

EAST Browser - L13: (1) JP-50115293... | JP 50115293 A | Tag: S,T1 | Doc: 1/1 | Format: FULL

File Edit View Tools Window Help

Foreign Full: First Abstract

DERWENT-ACC-NO: 1975-84022W

DERWENT-WEEK: 197551

COPYRIGHT 1999 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Tetrafluoro ethylene-hexafluoropropene copolymers -
useful for producing pore-free moulded articles

PATENT-ASSIGNEE: DAIKIN IND LTD[DAIK]

PRIORITY-DATA: 1974JP-0022600 (February 26, 1974)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE	PAGES	MAIN-IPC
JP 50115293 A	September 9, 1975	N/A	000	N/A
JP 81044883 B	October 22, 1981	N/A	000	N/A

INT-CL (IPC): C08F006/10, C08F214/26

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 50115293A

BASIC-ABSTRACT:

Tetrafluoroethylene-hexafluoropropene copolymers (5-25 wt. % hexafluoropropene and 1-100x104 poise apparent melt viscosity at 380 degrees and 0.457 kg/cm2 shear stress) are kept for <10 min at 360-400 degrees and treated at temp. between 150 and the m.pt. of the copolymers to reduce the volatile content to 70% to the original and to produce pore free moulded articles.

TITLE-TERMS: ETHYLENE COPOLYMER USEFUL PRODUCE PORE FREE MOULD ARTICLE

DERWENT-CLASS: A14

CPI-CODES: A04-E09; A04-E10; A10-G01; A11-A;

Display Text Image HTML FULL

Start Inbox - Micro EAST - 100 eDAN Versi Document9 EAST Brow... 6:37 PM

JP-50-115293

Assignee: Daikin Ind.



特 許 願

昭和49年 2月26日

特許庁長官 殿

1. 発明の名称

テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロペン
キョウジュウゴクタイセイノホウホウ
共重合体の製造方法

2. 発明者

オオサカシヒガノヨドガクスイコウオリ
住所 大阪府大阪市東淀川区瑞光通6-12

氏名 カ 川 シ ン イ
中 川 深 一

(ほか4名)

3. 特許出願人

住所 大阪府大阪市北区梅田8番地 新阪急ビル

名称 (205) ダイキン工業株式会社

代表者 山 田 稔

4. 代理人 〒541

住所 大阪府大阪市東区本町2-10 本町ビル内

電話 大阪 (06) 262-5521

氏名 弁理士 (6214) 青山 森 (ほか1名)

明 細 書

1. 発明の名称

テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロ
ペン共重合体の製造方法

2. 特許請求の範囲

1. 共重合体中のヘキサフルオロプロペン含量が
5~25重量%で比溶融粘度が $1 \sim 100 \times 10^4$
ポイズである重合後のテトラフルオロエチレン-
ヘキサフルオロプロペン共重合体を、360~
400℃の温度範囲で10分以下加熱した後、
150℃より高く前記共重合体の融点より低い温
度範囲において解放条件下で処理し、前記共重
合体の揮発分含量を初期揮発分含量の70%以下に
減少させることを特徴とする発泡の生じない機械
的性質の優れたテトラフルオロエチレン-ヘキサ
フルオロプロペン共重合体の製造方法。

3. 発明の詳細な説明

本発明は改良されたテトラフルオロエチレン-
ヘキサフルオロプロペン共重合体を製造する方
法に関する。

① 日本国特許庁

公開特許公報

①特開昭 50-115293

④公開日 昭50.(1975) 9. 9

②特願昭 49-22600

②出願日 昭49.(1974) 2. 26

審査請求 未請求 (全6頁)

庁内整理番号

6779 4f
6779 4f
7342 4f

⑤日本分類

260C121
260C12
260A5

⑤ Int. Cl²

C08F 214/26
C08F 6/0011
(C08F 214/26
C08F 214/28)

従来、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオ
ロプロペン共重合体の製造方法に関して多くの方
法が提案されている。例えば、特公昭34-85
44号明細書において、テトラフルオロエチレン
とヘキサフルオロプロピレンの水性乳化共重合体
を $\log t = 8.6227 - 0.0235T$ (但し、 t
は加熱時間(時)、 T は加熱温度(℃))なる関
係に従って揮発分を除去しながら300~400
℃の温度範囲で加熱処理することが提案されてい
るが、この目的を達成するには極めて高い温度を
必要とするために共重合体が溶融して相互に融着
する。そのため、微粉砕してその後の使用に供す
ることがはなはだ困難であり、また容器に強く密
着しているため容器から剥離することが容易でな
い。また、例えば、特公昭42-20781号明
細書においては、揮発分が充分少い程に高い溶融
粘度の共重合体を加熱処理して成型加工に適する
ように溶融粘度を下げる方法が提案されているが
、溶融粘度を下げるためにかなり厳しい加熱処理
を要するため不便である。

更に、揮発分が化学的不安定な末端に基くものであるとして、例えば米国特許第3085083号明細書に記載の如く水蒸気で処理して末端を安定化させる方法や、特公昭46-3179号明細書に記載の如くメタノールと接触せしめ末端を安定なメチルエステルに変換させる方法等が提案されているが、これらは何れも処理のために特殊な装置を要し経済的な面から不利益をこうむるのみならず、操作の過程において好ましくない不純物の混入が避けられない

本質的に末端の安定なハロオレフィン重合体は、重合開始剤として特定のパークロロフルオロジアルシルバーオキシサイドを使用する特公昭47-44031号明細書に記載された方法に従って容易に取得することができる。しかしながら、かかる条件のもとに得られた重合体についても、通常の条件下で成型し得るに好ましい程度の熔融粘度を有するものについては揮発分含量は末端不安定な従来の重合体より減少しているにも拘らず、成型時や加熱押出によるベレット化時には発泡がな

型体の発泡の有無を決めるのではなく、本質的に重合体鎖の結合様式が発泡に関係していることを示すものと考えられる。また、この事実の証左として成型体の機械的性質、とくに伸度がこの発泡の生起の程度と深く関連していることも挙げることができる。

本発明は、以上のような発泡がなく機械的性質の優れたテトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロペン共重合体を製造する新しい方法を提供することを目的とするものである。本発明の目的は、ヘキサフルオロプロペン含量が5~25重量%で比熔融粘度が $1 \sim 100 \times 10^4$ ポイズである重合後のテトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロペン共重合体を、360~400℃の温度範囲で10分以下加熱した後、150℃より高く前記共重合体の融点より低い温度範囲において解放条件下で処理し、前記共重合体の揮発分含量を初期揮発分含量の70%以下に減少させることによつて達せられる。

本発明の方法で製造されるテトラフルオロエチ

レン-ヘキサフルオロプロペン共重合体は、比熔融粘度が5~10 $\times 10^4$ ポイズ程度のテトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロペン共重合体を350℃以下の温度で成型した場合には、成型体を二次加工のために融点以上の温度で加熱しても350℃以下なら発泡はないが、350℃以上の温度で成型した場合には成型体を融点以上の温度で加熱すると発泡が起る。このように構造的に末端の安定な重合体にも発泡が起り、また成型温度の高低によつて発泡の起り方に差異が生ずることは、末端の安定性や揮発分含量のみがこの重合体から得られる成

いの、これを二次加工するために加熱するとき成型体中に気泡を生じることがあり、更にこの重合体から発泡なしに成型体が製造されても、この成型体は機械的性質が劣るために限られた用途にしか使用できない場合があるという問題を有している。

この発泡現象について少しくわしく観察すると、例えば前記特公昭47-44031号明細書に記載の方法に従つて得られたヘキサフルオロプロペン含量が8~20重量%、比熔融粘度が5~10 $\times 10^4$ ポイズ程度のテトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロペン共重合体を350℃以下の温度で成型した場合には、成型体を二次加工のために融点以上の温度で加熱しても350℃以下なら発泡はないが、350℃以上の温度で成型した場合には成型体を融点以上の温度で加熱すると発泡が起る。このように構造的に末端の安定な重合体にも発泡が起り、また成型温度の高低によつて発泡の起り方に差異が生ずることは、末端の安定性や揮発分含量のみがこの重合体から得られる成

レン-ヘキサフルオロプロペン共重合体は、熔融押出や射出等の成型時に発泡しないことはもちろん、その後成型体を二次的成型等のために融点以上に加熱するときにも発泡を生起することがない。また、この共重合体の機械的性質は、本発明の熱処理をしない重合後の共重合体に比して顕著に改良されている。とくに、重合後の共重合体の伸度が約100%と非常に不満足なものであるのに、本発明の共重合体ではこの値が約2倍以上となつて応用分野も拡大される。

本明細書において、前記重合後の共重合体とは、重合後に通常の洗滌、乾燥等の外に特別の熱的履歴を経ない共重合体を意味する。

なお、本明細書において、共重合体中のヘキサフルオロプロペン含量(重量%)は、厚さ約2ミルのフィルムの赤外線吸収スペクトルにおいて、波数 980 cm^{-1} における吸光度を波数 2350 cm^{-1} における吸光度で割つて得られる値を3.2倍した数値として求める。

また、共重合体の比熔融粘度は、0.457 kg/

cm^2 の剪断応力下に、温度 380°C で測定した見かけ溶融粘度を意味する。即ち、この値は、高化式フローテスターを使用して求めたもので、共重合体を内径 9.5mm のシリンダーに装填し、温度 380°C に 5 分間保持したのち 5Kg のピストン荷重下に内径 2.1mm 、長さ 8mm のオリフィスを通して押出し、このときの押出速度 ($\text{g}/\text{分}$) で 53150 を割って得られる値で、ポイズで表わされたものである。

更に、共重合体中の揮発分含量は、乾燥した共重合体を約 10mmHg 絶対圧の下に 380°C に 30 分間加熱して揮発分を放出させ、このとき失われる共重合体の重量の全重量に占める割合によって示される。

本発明の加熱処理は、前記のとおり 2 段階から成るものであつて、まず重合後の共重合体を $360\sim 400^\circ\text{C}$ の温度範囲で 10 分以下加熱する。この加熱処理は、共重合体を皿に架せ電気炉中で加熱するというような開放条件下に行なつてもよいし、また密閉条件下に行なつてもよい。密閉条件

下で行なうことができる。また、第一段階の加熱処理の温度が 360°C より低い場合には、第二段階での加熱処理を行なつても、本発明の目的とする発泡のない機械的性質の良好な共重合体は得られない。一般に本発明の第一段階の加熱処理の条件は、前記 2 つの公知の加熱処理方法に比して緩和である。事実、これら公知の方法においては加熱処理の過程で溶融粘度の変化、とくに低下が起り、公知の方法はこのことを積極的な目的としているのに対し、本発明は第一段階の加熱処理において溶融粘度を変化させることは本質的に必要でなく、事実、加熱処理条件が緩和であるから変化があつても微小である。

第二段階の加熱処理は、 150°C より高く共重合体の融点より低い温度において、開放条件下に行なわれる。この共重合体の融点はヘキサフルオロプロペンの共重合体中の含量によって変化するが、本発明の対象とする含量の範囲内では約 $210\sim 300^\circ\text{C}$ である。具体的な加熱処理の方法としては、第一段階の加熱処理後、共重合体を皿、網

特開昭50-115293(3)

下の加熱とは、例えば、共重合体を溶融押出機によつて押出成型するような、実質的な熱処理を外気と接触させることなくもつばら押出機の中で終了させるような場合である。この方法を採用するときは、押出機をペレタイザーとして使用し、熱処理をペレツティングと同時に終了させることができる。前述の特公昭 $34-8544$ 号あるいは特公昭 $42-20781$ 号明細書における加熱処理に比して本発明の第一段階の加熱処理はきわめて短時間で終了するため、このようにペレタイザー等の押出機によつて能率よく行なうことができる。更に、こうした密閉系での加熱処理は異物の混入等の可能性を最小限にすることができる。この第一段階の加熱処理の際に 400°C をこえると共重合体の分解が起るので、一般的には好ましくない。しかし、重合後の共重合体の溶融粘度が高すぎる場合には、最初 400°C 以上の温度に加熱して積極的に分解を行なわせ、次いで 400°C 以下の温度において処理することができる。いうまでもなく、このような加熱処理の過程は一つの押

などに広げ、電気炉中に静置するような方法がとられる。処理に要する時間は温度によつて異なるが、 200°C 以上の温度では 1 時間以上を要し、一定時間を超えると時間をいくら長くしても揮発分含量は飽和値に達し、一定値以下にはならない。この加熱処理は通常常圧下で行なわれるが、減圧下で行なうこともできる。

重合後のテトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロペン共重合体の揮発分含量は重合条件によつて大きく異なり、通常 0.2% 以上、高いときは 1.5% にも達する。この揮発分は本発明の第一段階の加熱処理によつてよりむしろ第二段階の加熱処理によつて実質的に低減される。第一段階の加熱処理においてベント式押出機のような加熱しつつ減圧する方法をとれば揮発分の減少には多少効果はあるが、これのみでは決して本発明の目的とする共重合体の安定化は達せられない。

加熱処理後の最終揮発分の含量は、原料である重合後の共重合体の揮発分含量の 70% 以下になつていなければならない。多くの場合、第一段

階の加熱処理の終了時にはこの目標値が達成されておらず、第二段階の加熱処理後に始めて達せられるのが普通である。ここに、本発明の第二段階の加熱処理の意義の重大性が強調される。更に、注目すべきことは、このように加熱処理された後の本発明の共重合体の揮発分含量は上記のとおり原料共重合体のその70%以下であればよく、その数値範囲に絶対的な制限はないことである。したがって、これまでの各種の公知の方法が必要としたように揮発分含量を0.3%以下とすることは、全く必要でなく、後記実施例に見られるように揮発分含量が0.7%という高い値であつても十分満足な共重合体となる。

本発明方法における処理前と処理後の揮発分含量の関係は、グラフに描いて理解することができる。即ち、処理前の共重合体の揮発分含量の値をグラフの横軸(x軸)にとり、縦軸(y軸)に処理後の共重合体の揮発分含量の値をとり、このグラフ上に $y = 0.7x$ の直線を描くと、本発明により二次発泡のない成型品の得られるのは処理前と

処理後との揮発分含量がこの直線の下にプロットされた場合であり、この直線の上では二次加熱の際発泡が起ることを示している。

本発明によるテトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロペン共重合体は、加工性の改良された機械的性質の優れた成型品を提供するものであり、このことから用いられる共重合体中のヘキサフルオロプロペン含量は5~25重量%、好ましくは8~20重量%の範囲内にある。ヘキサフルオロプロペン含量がこれより低い場合には、機械的性質を損うことなく溶融加工できる特性を有する共重合体は得られないし、これより高いヘキサフルオロプロペン含量の場合には、共重合体の融点は著しく下り、高温での使用に適さなくなり、また機械的性質の優れた共重合体が得られ難い。

本発明に用いられる共重合体の好ましい比溶融粘度の範囲は、 $1 \sim 100 \times 10^4$ ポイズの範囲内にある。上記ヘキサフルオロプロペン含量において、比溶融粘度が 1×10^4 ポイズより低い場合は好ましい機械的性質の成型品は得られない。ま

た、 100×10^4 ポイズを越えると、粘度が高くて溶融加工時の流れが悪くなるために、成型に適さなくなり、あるいはこれを加工しようとするれば過度に高い成型温度を要するために成型時の熱劣化が激しく起り好ましくない。

本発明に使用されるテトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロペン共重合体は通常の重合方法において得られるものである。即ち、重合開始剤の存在下あるいは電離性放射線照射下重合せられたものである。通常は有機あるいは無機の過酸化物の存在下、乳化、懸濁、塊状重合等の方法が用いられる。殊に、重合開始剤として末端安定な共重合体を生成するパーフルオロクロロジアルパーオキサイド等を用いて重合せしめた共重合体は特に有用である。本発明の原料としてのこれらの共重合体は特別に処理することなしに、通常の洗滌、乾燥したものを用いることができる。

本発明の方法による処理を受けた共重合体は、圧縮成型、押出成型、射出成型等あらゆる溶融加工の方法によつて加工することができ、高温から

極低温における雰囲気中であつても、また殆どあらゆる酸化剤、還元剤、溶剤、薬品類に接する場合においても広範囲の温度領域で広範囲に用いることができる。即ち、広い範囲において電氣的、機械的、化学的用途に種々の形の成型品として実用に供することができる。

次に実施例を挙げて本発明を具体的に説明する。なお、実施例中「部」とあるは「重量部」を意味する。

実施例 1

水360部を収容できるジャケット付き攪拌式ガラスライニング製オートクレーブに脱イオン水100部と重炭酸ソーダ0.1部を仕込み、封じた後窒素ガスで数回置換をくり返した。次いで、ヘキサフルオロプロペン95部とテトラフルオロエチレン12.5部を仕込み、回転数140 rpmで攪拌しながら槽温を24℃に設定する。1,1,2-トリクロロ-1,2,2-トリフルオロエタン(以下R-113と略す)中に約30重量%の濃度で存在するジ(3,5,6-トリクロロパーフルオロヘキサ

ノイル)パーオキサイド(以下DHPと略す)を0.218部加えて重合を開始し、以下5時間おきに2回DHP 0.109部を加える。重合開始1.5時間後分子量調節剤として四塩化炭素5部を加える。この温度でオートクレーブ中の重合圧は初期に $7.9 \text{ kg/cm}^2\text{G}$ を示し、重合が進むに従って重合圧が下るので、テトラフルオロエチレンを加えて圧の低下を補いつつ15時間重合を行なった。加えたテトラフルオロエチレンは68部であった。重合終了後モノマーを放出し、次いで粉末状のポリマーを回収し、これを洗滌、乾燥して80部の共重合体を得た。この共重合体はヘキサフルオロプロペン含量10.9重量%、比溶融粘度 4.4×10^4 ポイズ、揮発分含量0.36%であった。

この共重合体を内径40mm、L/D 20のシリンダー、圧縮比3.2のスクリューを有する押出機を用い、シリンダー部を入口からほぼ等間隔に C_1 、 C_2 、 C_3 および C_4 の4つの部分に区分したとき C_1 部200℃、 C_2 部360℃、 C_3 、 C_4 部およびダイス部390℃の温度に保ち、スクリュー回転数

加熱して溶融させたときにシート内に起る発泡の有無を目視により判定する。このとき、シート内に泡が発見されないときのみを発泡なしとする。

なお、比較のために、押出の際のシリンダー温度 C_1 部200℃、 C_2 部300℃、 C_3 、 C_4 部およびダイス部330℃に保ち、スクリュー回転数36rpm、押出速度5.5kg/時で上記重合後の共重合体のペレット押出しを行ない、引続き240℃で3時間処理したが、揮発分含量は0.34%であった。このペレットについて上と同様の方法で射出してシートを成型し、これについて発泡試験を行なったところ、多数の発泡の生起が認められた。

実施例2

実施例1と同じ様な重合方法で、重合温度30℃、重合圧 $9.3 \text{ kg/cm}^2\text{G}$ として15時間重合を行ない、39部の共重合体を得た。この共重合体のヘキサフルオロプロペン含量15.0重量%、比溶融粘度 2.4×10^4 ポイズ、揮発分含量1.04%であった。

この共重合体を実施例1と同じ押出機を用い、

特開昭50-115293(5)

18rpm、押出速度5kg/時においてペレットに押出した。得られたペレットの比溶融粘度は 4.1×10^4 ポイズ、揮発分含量は0.31%であった。このペレットを加熱炉中240℃で3時間、17時間、60時間処理したところ、比溶融粘度は変わらず、揮発分含量は各々0.17%(初期揮発分含量の47.2%)、0.18%(同50.0%)、0.17%となつた。なお、同じペレットを減圧下240℃で3時間処理したところ、揮発分含量は0.18%であった。

これらのペレットを日本製鋼製のN-65型スクリュー射出成型機を用い、シリンダー C_1 部300℃、 C_2 および C_3 部385℃、ノズル部380℃および金型200℃の温度に保ち、巾30mm、長さ110mmおよび厚み2mmのシートに成型した。この射出成型品について次の条件下で発泡試験を行なつて発泡の生起の有無を観察したところ、上記いずれの成型品にも発泡の生起を全く認めなかった。

発泡試験は、成型シートを300℃で10分間

シリンダー温度 C_1 部200℃、 C_2 部360℃、 C_3 、 C_4 部およびダイス部380℃、スクリュー回転数18rpm、押出速度3kg/時でペレットに押出したところ、揮発分含量は1.04%と変わらなかつたが(サンプル1)、このペレットを240℃で17時間、常圧下加熱処理を行つたところ、揮発分含量は、0.54%(初期揮発分含量の51.9%)に減少した(サンプル2)。

また、この共重合体を同様にしてシリンダー温度 C_1 部200℃、 C_2 部300℃、 C_3 、 C_4 部およびダイス部320℃、スクリュー回転数30rpm、押出速度6kg/時でペレットに押出し、更に、240℃で17時間加熱処理を行なつたが、揮発分含量は初期と変わらず1.04%であった(サンプル3)。

以上の3つのサンプルを用いて実施例1に記載したのと同じくシートを射出成型し、同様な発泡試験を行ない、さらに引張試験により引張強さおよび伸びを測定した。結果を第1表に示す。

第1表

サンプル番号	引張試験		発泡試験
	引張強さ(Kg/cm ²)	伸び(%)	
1	176	94	あり
2	171	194	なし
3	181	96	あり

この結果より、本発明方法より逸脱した方法で製造した成型品(サンプル1および3)は、伸びおよび発泡の点において劣ることが認められた。これにより、本発明方法における第二段階の融点以下での加熱処理を受けることで共重合体の機械的性質や溶融時の発泡が改良されることがわかる。

実施例3

実施例2で得られた重合後の共重合体を用い、内径65mm、L/D28のシリンダーを有するベント式押出機を用い、溶融部のシリンダー温度380℃でペレット押出しを行なった。ベント部で真空中に引きながら押出した場合、ペレットの揮

つた。

この共重合体を用い、実施例1の押出機でペレット押出しを行なった。溶融部のシリンダー温度370℃、押出速度5kg/時でペレット押出しし、更に240℃で17時間加熱処理したものは揮発分含量0.34%(初期揮発分含量の77.3%)であつた(サンプル1)。また、同様に溶融部のシリンダー温度390℃、押出速度3kg/時でペレット押出しを行ない、240℃で17時間加熱処理したペレットは揮発分含量0.29%(初期揮発分含量の66%)であつた(サンプル2)。

内径25mmのシリンダーを有する押出機でこれらのペレットを用いて、シリンダー部310～355℃、ダイス部375～380℃、スクリー一回転数20rpmでパイプ成型を行なった。このパイプ片を300℃で10分間加熱して発泡の有無を調べたところ、サンプル1から成型したものはやや発泡が認められたが、サンプル2から成型したものは発泡は認められなかった。

特許出願人 ダイキン工業株式会社

代理人 弁理士 青山 稔外1名

特開昭50-115293(6)

発分含量は0.75%であつたが、240℃で17時間加熱処理すると0.56%に下つた。このことは、ペレット押出しの際真空中に引くだけでは揮発分含量は十分に下らないことを示している。

一方、ベント部を真空中に引かない場合は、ペレット押出し直後では揮発分含量は0.97%であつたが、240℃で17時間加熱処理すると0.59%に下つた。このペレットから実施例1に記載したのと同じ方法によりシートを射出成型し、発泡試験を行なったところ、シートに発泡の生起を認めなかった。

実施例4

実施例1と同様の重合方法において、オートクレーブにさらに四塩化炭素3部を加え、重合温度30℃、重合圧9.7kg/cm²Gにおいて、開始剤DHPは重合開始時に0.25部以下3.5時間毎に0.067部を追加して21時間重合を行なった。得られた共重合体は107部で、この共重合体のヘキサフルオロプロペン含量12.5重量%、比溶融粘度 7.7×10^4 ポイズ、揮発分含量0.44%であ

5.添附書類の目録

(1) 明 細 書	1 通
(2) 図 面	1 通
(3) 委 任 状	1 通
(4) 願 書 副 本	1 通

6.前記以外の発明者および代理人

(1) 発明者

アマガキンカグチタツミ
住所 兵庫県尼崎市塚口辰巳800
オクダマサヒロ
氏名 奥 田 正 弘
トヨカガシンセンリミナマチ
住所 大阪府豊中市新千里南町1-1-911
サカタシンスケ
氏名 坂 田 晋 祐
セツシヒトツヤ
住所 大阪府摂津市一津屋700
アタチトキオ
氏名 足 立 登 起 夫
イバキンキタカガカ
住所 大阪府茨木市北春日丘4-5-13
アサノコウノ
氏名 浅 野 興 三

(2) 代理人 〒541

住所 大阪府大阪市東区本町2-10 本町ビル内
電話 大阪 (06) 262-5521
氏名 弁理士 (6852) 田 村 恭 生